

REMARKS

By the present Amendment, independent claims 1 and 15 have been amended to define certain aspects of the invention with greater precision. In particular, claim 1 has been amended to define a laminate comprising two or more magnetic metal thin plates with each magnetic metal thin plate being selected from the group consisting of an amorphous metal plate and a nano crystal magnetic plate and coated with a high molecular compound. The two or more magnetic metal thin plates are partially in contact with one another by applying pressure so that the high molecular compound that is positioned between the two or more magnetic metal thin plates is pushed out, and wherein the volume resistivity defined in JIS H 0505 in a direction perpendicular to the high molecular compound surface of the magnetic metal thin plates is from 0.1 Ωcm to less than 10⁸ Ωcm. Support for the recitation of the application of pressure so that the high molecular compound is pushed out being found at least in paragraphs [0025] to [0026] of the specification. Independent claim 15 has been amended in a similar manner. Furthermore, claim 5 has been canceled without prejudice or disclaimer and new claims 17-20 have been added which are supported in at least paragraphs [0020] and [0048].

The significance of the presently claimed aspects of the invention can be understood from the description and evidence provided in the specification. As discussed in the background, the art has provided a magnetic metal material by laminating a plurality of single thin plates. In order to suppress eddy currents between the magnetic metal thin plates the plates have been coated with a resin to actively achieve electrical insulation. However, the presence of a high molecular compound between the plates causes the stacking factor to be lowered and, when

the laminate is used for a magnetic core, the generated heat is locked up in the laminate.

The present invention addresses this challenge in the art and provides a laminate comprising two or more magnetic metal thin plates, each being selected from a defined group and coated with a high molecular compound wherein the two or more magnetic metal thin plates are partially in contact with one another. This partial contact reduces the temperature elevation exhibited by a core. In this respect, by applying pressure so that the high molecular compound that is positioned between the two or more magnetic metal thin plates is pushed out (as discussed in aforementioned paragraphs [0025] and [0026]), the partial contact of the magnetic metal thin plates can be obtained.

Applicants have found that a volume resistivity in the recited range enables this advantageous result to be obtained. It should be understood that in the absence of the high molecular compound positioned between the two or more magnetic metal thin films, the volume resistivity would be less than $0.1 \Omega\text{cm}$ whereas if the metal thin plates do not contact each other, the volume resistivity would be above $10^8 \Omega\text{cm}$. This understanding is further discussed in paragraph [0024].

The advantageous results which may be obtained in accordance with the present invention are illustrated in Table 1 in paragraph [0082]. As may be seen therefrom, when the metal laminate is prepared in accordance with the claims, including the application of pressure and the recited volume resistivity, good thermal conductivity and low temperature elevation can be obtained in contrast with the Comparative Examples which have a volume resistivity above and below the recited range.

With the foregoing discussion in mind, applicants respectfully submit that the claims now of record cannot be properly rejected over the cited prior art. Watanabe et al., JP 4-170012 discloses a magnetic core formed by winding an amorphous metal ribbon to form an annular shape which is then coated with an epoxy resin. This technique provides the structure illustrated in the document and reproduced on page 4 of the Official Action. As is evident therefrom, the amorphous metal ribbon that forms the magnetic core contacts the epoxy resin coating only at the outermost surface thereof. The inside of the magnetic core is formed from layers of the amorphous metal ribbon that are wound upon each other and not in the manner recited in the claims with the magnetic metal thin plates partially in contact with one another by applying pressure in the recited fashion. Furthermore, the Examiner's statement that the recited volume resistivity would be inherent is clearly in error. By having the coating only on the surface, the adjacent windings would be in direct contact with each other and would have a volume resistivity that is below $0.1 \Omega\text{cm}$, such as shown in Comparative Example 2. Nor would it be obvious to obtain a volume resistivity in the claimed range since to do so would be to completely change the arrangement explicitly described in Watanabe et al.. Thus, whether considered alone or in combination with Pettigrew et al., U.S. Patent No. 4,960,651, which has been cited for the use of a polyimide resin, one would still not arrive at the laminate specifically defined in the claims of record.

The amended claims are also patentable over the combination of Pettigrew et al. and Jin et al., U.S. Patent No. 7,106,163. As discussed during the course of prosecution of the present application, Pettigrew et al. relates to an antipilferage tag. The tag includes, as essential components, a resin substrate on which a magnetic

material is deposited (an amorphous metal glass) and a deactivation layer formed from a semi-hard material. The patent specifically states at column 1, lines 36-39:

The magnetic material for such tags should possess a high intrinsic permeability. It is desirable that the material additionally have low or zero magnetostriction and low coercivity.

On the other hand, Pettigrew et al. states at column 8, lines 27 to 29:

The deactivation layer must be magnetically semi-hard, i.e., with a coercivity H_c in the range 1,000-10,000 A/m.

Pettigrew et al. also discloses that that the application of a fixed magnetic field to a semi-hard magnet portion of the tag is used to saturate the soft magnetic material of the tag and hence render it inoperative or so as to change the effective magnetic properties so that it is not recognized by the detection system. (column 6, lines 43 to 47). By employing this function of the semi-hard material, the structure of Pettigrew et al. can be used as an antipilferage tag. It is to be understood that Pettigrew et al. specifically warns that a hard magnetic material should not be used since the high coercivity "could lead to interference with other, non-related magnetic media such as credit cards or pre-recorded audio tapes." (column 6, lines 54-56).

In contrast to the teachings of Pettigrew et al., the laminate of the present invention includes two or more magnetic metal thin plates that are selected from an amorphous metal plate and a nanocrystal magnetic plate or a nanocrystal magnetic plate and a silicon steel sheet. Such materials are classified as soft-magnetic material. This understanding can be obtained from reviewing the attached excerpt from the technical literature entitled "Types of Magnetic Materials and Their Usages". As may be seen from Table 1, the coercive force (coercivity) of major soft magnetic materials, including silicon steel and amorphous metal, ranges from 0.16 to 160 A/m,

which is far lower than the semi-hard material with a coercive force in the range of from 1,000-10,000 A/m as specified by Pettigrew et al.

Table 2 of the literature shows the properties of major hard magnetic materials including coercive forces ranging from 40 to 960 KA/m (40,000 to 960,000 A/m). Therefore, the semi-hard material as specified by Pettigrew et al. has an intermediate value of coercivity between those of soft magnetic materials and hard magnetic materials. In view of the specific function of the deactivation layer and the express statement in Pettigrew et al. that the deactivation layer must be magnetically semi-hard it would not be obvious to form the deactivation layer of Pettigrew et al. from a soft magnetic material since such a structure would not function as an antipilferage tag. In this respect, there are a number of decisions which maintain that references cannot be combined if the effect would be to destroy the invention on which one of the reference patents is based. See, e.g., *Ex parte Hartmann*, 186 USPQ 366 (Bd. App. 1974) and *Carl Schenck, AG. v. Nortron Corp.*, 218 U.S.P.Q. 698 (Fed. Cir. 1983).

Jin et al. does not remedy the deficiencies of Pettigrew et al. and even if a proper basis for the combination exists, the combination would still not result in the presently claimed invention. Jin et al. discloses an isolation transformer core having a coil and a core member. The core member is formed from a mixture of a soft magnetic material and an insulating material having an electrical insulating property, such as discussed in the abstract. The patent further discloses that sintered ferrite is generally used as the material for cores, but that it has the disadvantage of fragility (column 1, lines 39-59). In order to meet this problem, Jin et al. uses a mixture of an insulating material and a soft magnetic material with Figure 4 illustrating the relationship between volume resistivity and the content of soft magnetic ferrite in two

mixtures: a mixture of Ni-Zn ferrite with an insulating material and a mixture of Mn-Zn ferrite with an insulating material. In discussing these results, the patent states at column 8, lines 32-37:

A mixed soft magnetic material containing Ni-Zn ferrite has a high volume resistivity, though it is expensive. It is desirable to use a mixed soft magnetic material containing Ni-Zn ferrite **when a mixed soft magnetic material containing Mn-Zn ferrite does not satisfy a required volume resistivity.** (emphasis added)

Based on this disclosure, those of ordinary skill in the art would be led to the understanding that a volume resistivity of $10^8 \Omega\text{cm}$ or less is not preferred. Thus, even if one of ordinary skill in the art would be led to manipulate the volume resistivity of Pettigrew et al. in order to control the relative permeability as alleged by the Examiner, such individual would be led to a volume resistivity in a range above that recited in the claims of record. Thus, whether viewed individually or in combination, the cited prior art does not disclose or suggest the invention as defined in the claims including how the two or more magnetic metal thin plates are prepared so that they are only partially in contact with one another and the specific volume resistivity which is attained when the magnetic metal thin plates are neither in complete contact with one another nor totally insulated from one another. Furthermore, the art also does not recognize the advantageous results discussed above.

For all the foregoing reasons, applicants respectfully maintain that the claims of record are patentable in all regards and therefore request reconsideration and allowance of the present application.

Should the Examiner wish to discuss any aspect of the present application, the Examiner is invited to contact the undersigned attorney at the telephone number provided below.

Respectfully submitted,

Buchanan Ingersoll & Rooney PC

By: Robert G. Mukai

Robert G. Mukai
Registration No. 28531

P.O. Box 1404
Alexandria, Virginia 22313-1404
(703) 836-6620

Date: July 6, 2009

II. Types of magnetic materials and their usages

1. types of magnetic materials

By Sadamu Matsuda

Tokyo CS Engineering Department,
Sanyo Special Steel Co., Ltd.

<Introduction>

Magnetic materials are classified into two groups. One is soft magnetic materials that have lower coercive force and hard magnetic materials that have higher coercive force. Major soft magnetic materials are shown in Table 1 and hard magnetic materials in Table 2.

Table 1. Soft magnetic materials.

Category	Material	Composition	Initial Permeability μ_i	Max magnetic permeability μ_{max}	Saturation magnetic flux density $B_s [T]$	Coercive Force $H_c [A/m]$	Electrical Resistivity [$\mu \Omega m$]
Iron	Soft magnetic iron	Fe	300	8,000	2.15	64	0.11
	Silicon Steel	Fe-3Si	1,000	30,000	2	24	0.45
	Fe-Al Alloy	Fe-3.5Al	500	19,000	1.51	24	0.47
	Alperm	Fe-16Al	3,000	55,000	0.64	3.2	1.53
	Permendur	Fe-50Co-2V	650	6,000	2.4	160	0.28
	Sendust	Fe-9.5Si-5.5Al	30,000	120,000	1.1	1.6	0.8
Permalloy	45permalloy	Fe-45Ni	2,500	25,000	1.6	2.4	0.45
	78permalloy	Fe-78.5Ni	8,000	100,000	0.86	4	0.16
	Supermalloy	Fe-79Ni-5Mo	100,000	600,000	0.63	0.16	0.6
	Mumetal	Fe-77Ni-2Cr-5Cu	20,000	100,000	0.52	4	0.6
	hardperm	Fe-79Ni-9Nb	125,000	500,000	0.1	0.16	0.75
Soft Ferrite	Mn-Zn Ferrite	32MnO-17ZnO-51Fe ₂ O ₃	1,000	4,250	0.425	19.2	0.01~1.0 Ω m
	Ni-Zn Ferrite	15NiO-35ZnO-51Fe ₂ O ₃	900	3,000	0.2	24	10 ³ ~10 ⁷ Ω m
	Cu-Zn Ferrite	22.5CuO-27.5ZnO-50Fe ₂ O ₃	400	1,200	0.2	40	1000 Ω m
Amorphous metal	Fe Amorphous	Fe-5Si-3B	5,000	500,000	1.56	2.4	1.3
	Co Amorphous	Co _{81.8} -Fe _{4.2} -Ni _{4.2} -Si ₁₀ -B ₂₀	120,000	—	0.54	0.16	—

Table 2. Hard magnetic materials

Category	Material	Remanence Br	Coercive Force		Maximum energy Product
			iH _c	_B H _c	(BH) _{max}
		[T]	[KA/m]	[kJ/m ³]	
Fe-Cr-Co	Isotropy	0.80	42	40	12
	Anisotropy	1.00	46	45	28
		1.30	49	47	43
Alnico Magnet	Alnico5 JIS-MCB500	1.25	—	50.1	39.8
	Alnico5 JIS-MCB750	1.35	—	61.7	63.7
	Alnico6	1.065	—	62.9	31.8
	Alnico8	0.80	—	111	31.8
Hard Ferrite	Istropic BaFe ₁₂ O ₁₉	0.22~0.24	255~310	143~159	7.96~10.3
	Anisotropic BaFe ₁₂ O ₁₉ (High Energy Product)	0.40~0.43	143~175	143~175	28.6~31.8
	Anisotropic BaFe ₁₂ O ₁₉ (High Coereivity Product)	0.33~0.37	239~279	223~255	19.9~23.9
	Anisotropic SrFe ₁₂ O ₁₉ (High Energy Product)	0.39~0.42	199~239	191~223	26.3~30.2
	Anisotropic SrFe ₁₂ O ₁₉ (High Coereivity Product)	0.35~0.39	143~175	215~255	20.7~26.3
Rare Earth Magnet	Sm ₂ Co ₁₇	1.12	550	520	250
	Nd ₂ Fe ₁₄ B	1.23	960	880	360

◇ Soft magnetic materials

Soft magnetic materials include crystalline materials such as silicon steel sheets, permalloy, sendust and ferrite, and recently developed amorphous alloy and nanocrystal alloy as noncrystalline material or microscopic texture material.

1. Silicon Steel Sheets

There are two types of silicon steel sheets. One is grain-oriented silicon steel sheets and the other is non-oriented. Grain-oriented silicon steel is manufactured with an Fe-3%Si alloy by rolling and heat treatment. This type of silicon steel is used for magnetic cores of transformers and electric motors with low iron loss. Non-oriented silicon steel is used for rotors of generators and

electric motors. Recently 6.5%Si material has been developed by treating 3%Si material with CVD, which is used for high frequency.

2. Permalloy

An alloy of Fe-30~90%Ni is called permalloy which has high permeability. Electromagnetic characterization of permalloy varies largely with its Ni content and thus permalloy of different Ni contents are used for different purposes. 40~50%Ni permalloy is used for magnetic heads because of its high saturation magnetic flux density and 70~80%Ni is used for transformers, magnetic heads, magnetic shields, etc. because of very high initial permeability.

3. Sendust

An alloy of Fe-9.5%Si-5.5%Al is called sendust which has high permeability and low coercive force as well as excellent abrasion resistance and thus it is used for magnetic heads.

4. Soft Ferrite

Soft ferrite is a chemical compound of Fe_2O_3 and divalent metal oxide MO with the chemical formula of $\text{MO} \cdot \text{Fe}_2\text{O}_3$. As it has remarkably high specific Resistance, it has small eddy current loss and is used for magnetic cores for high frequency.

5. Amorphous Alloy

Amorphous alloy is an epoch-making soft magnetic material with zero magnetic anisotropy and excellent magnetic homogeneity. It has been developed by liquid rapid cooling and sputtering methods.

Liquid rapid cooled Fe amorphous sheet having its basic composition of Fe-Si-B is used for magnetic cores of electric power transformers because of its large saturation magnetic flux density and small iron loss.

Liquid rapid cooled Co amorphous thin sheet whose composition is Co-Fe-Ni-Si-Bi as zero magnetostricion and is used for high frequency inductors and transformers

and magnetic heads in kHz zones because of its low coercive force and high permeability.

Sputtered Co amorphous thin film is suitable for the material for such thin film magnetic heads for high frequency zones of MHz as would need high saturation magnetic flux density because this amorphous is stable up until high Co density

compared with liquid rapid cooled amorphous.

6. Nanocrystal Alloy

Nanocrystal alloy is an magnetic material with its crystal grain diameter of 10~20 nm. Having high permeability and high magnetic flux density.

Typical ones are Fe-Si-B-Nb-Cu thin film which is manufactured by annealing and nano-crystallizing liquid rapid cooled amorphous and Fe-M-B (M: Zr, Hf, Nb) thin film, which is manufactured by nano-crystallizing sputtered amorphous. The former is used for transformers and the latter for magnetic heads.

7. Metal – Nonmetallic Nanogranular Soft Magnetic Material

This is a magnetic thin film made from such insulators as SiO₂, Al₂O₃, etc. in which ferromagnetic metal such as Co or Fe is precipitated on a nano-level. This material, having high saturation magnetic flux density and high electrical resistance, is expected to be used for superhigh frequency inductors, superhigh frequency power transformers • filters.

◇ Hard magnetic materials

Hard magnetic materials include Fe-Cr-Co and alnico types as metal alloy, Ba and Sr types as ferrite and SmCo and Nd-Fe-B as rare earthes.

1. Metal type Magnet

Magnet made with Fe-Co-Ni-Al is called alnico magnet, which usually is made as casting. Coercive force is based on ferromagnetic phase α 1 (Fe, Co) which is precipitated by heat treatment.

As temperature characteristics of its remanent magnetic flux density are stationary this magnet is used for precision measuring-devices, etc. Another magnet that has the same mechanism for coercive force is Fe-Cr-Co magnet. This magnet has toughness in a state of solid solution and thus can be rolled, drawn, etc.

2. Ferrite Magnet

Ferrite magnet is a type of magnet made from magnetite-type chemical compounds with the formula of MO · 6Fe₂O₃ (M=Ba, Sr). This type of magnet, though its maximum energy product is less than that of the rare earthes types of magnet, is most used as magnet material because of its excellent cost performance.

3. Rare Earthes Magnet

Since the first rare earthes type magnet Sm-Co magnet was developed, Development of rare earthes magnet has been advanced resulting in drastically Improved maximum energy product.

The maximum energy product of Nd-Fe-B type sintered manget amounts to more Than 400kJ/m³. The Main type rare earthes magnet is Nd-Fe-B, which is used for MRI and VCM. Bond magnet made with rapidly-cooled powder has been developed as well and is used for spindle motors and others. Now Sm-Fe-N type magnet is also studied as a new type of magnet.

As for how to improve magnetic characteristics at manufacturing stages, there have been such proposals as a method of miniaturizing crystal grain by treating Nd-Fe-B alloy with hydrogen absorption and discharge (HDDR method) and a method of improving degree of orientation and magnetic characteristics by combining degree of orientation of powder by pulse magnetic field with Nd-Fe-B magnet and hydrostatic molding with rubber mold.

Further, studies are going on of a new concept of nano-composit magnet (exchange-spring magnet) as a product to be made by combining soft magnetic property as in Fe₃B and hard magnetic property as in Nd₂Fe₁₄B.

II. 磁性材料の種類と使い方

1. 磁性材料の種類

山陽特殊製鋼(株) 東京CS技術部 まつだ さだむ
定 松田 定

まえがき

磁性材料は、保磁力の小さい軟質磁性材料（ソフト磁性材料）と大きい硬質磁性材料（ハード磁性材料）に大別される。代表的な軟質磁性材料を表1に、硬質磁性材料を表2に示す。

◇ 軟質磁性材料

軟質磁性材料には珪素鋼板、パーマロイ、センダスト、フェライトで代表される結晶質材料と、最近開発されたアモルファス合金、ナノ結晶合金などの非晶質や微細組織材料がある。

1. 硅素鋼板

硅素鋼板には方向性珪素鋼板と無方向性珪素鋼

板がある。方向性珪素鋼板はFe - 3%Si合金で圧延、熱処理により製造される。鉄損が小さく変圧器、電動機の磁芯に使用される。無方向性珪素鋼板は発電機や電動機の回転子に使われる。最近は3%Siの鋼板にCVDで処理した6.5%Si材が開発され高周波用に使われる。

2. パーマロイ

Fe - 30~90%Ni合金で高い透磁率をもつ材料はパーマロイと呼ばれる。電磁気特性はNi濃度に依存して大きく変わるので目的に応じた組成のものが使用される。40~50%Niは、特に飽和磁束密度が高く磁気ヘッドに使用される。70~80%Niは飽和磁束密度は低いが、初透磁率が極めて高く変圧器、磁気ヘッド、磁気シールド等に

表 1 代表的な軟質磁性材料

分類	材料名	組成	初透磁率 μ_i	最大透磁率 μ_{max}	飽和磁束密度 Bs [T]	保磁力 Hc [A/m]	比抵抗 [$\mu\Omega m$]
鉄系	電磁軟鉄	Fe	300	8,000	2.15	64	0.11
	珪素鋼	Fe-3Si	1,000	30,000	2.0	24	0.45
	鉄-アルミ	Fe-3.5Al	500	19,000	1.51	24	0.47
	アルパーム	Fe-16Al	3,000	55,000	0.64	3.2	1.53
	パーメンジュール	Fe-50Co-2V	650	6,000	2.4	160	0.28
	センダスト	Fe-9.5Si-5.5Al	30,000	120,000	1.1	1.6	0.8
パーマロイ系合金	45パーマロイ	Fe-45Ni	2,500	25,000	1.6	2.4	0.45
	78パーマロイ	Fe-78.5Ni	8,000	100,000	0.86	4	0.16
	スーパーパーマロイ	Fe-79Ni-5Mo	100,000	600,000	0.63	0.16	0.6
	ミューメタル	Fe-77Ni-2Cr-5Cu	20,000	100,000	0.52	4	0.6
	ハードパーム	Fe-79Ni-9Nb	125,000	500,000	0.1	0.16	0.75
フェライト化合物	Mn-Zn フェライト	32MnO-17ZnO-51Fe ₂ O ₃	1,000	4,250	0.425	19.2	0.01~1.0 [Ωm]
	Ni-Zn フェライト	15NiO-35ZnO-51Fe ₂ O ₃	900	3,000	0.2	24	10 ³ ~10 ⁷ [Ωm]
	Cu-Zn フェライト	22.5CuO-27.5ZnO-50Fe ₂ O ₃	400	1,200	0.2	40	1000 [Ωm]
アモルファス	Fe基アモルファス	Fe-5Si-3B	5,000	500,000	1.56	2.4	1.3
	Co基アモルファス	Co _{81.8} -Fe ₁₂ -Ni ₁₂ -Si ₁₀ -B ₂₀	120,000	—	0.54	0.16	—

表 2 代表的な硬質磁性材料

分類	材 料	残留磁束密度 Br [T]	保磁力		最大エネルギー積 (BH) max [kJ/m³]
			Hc	μ Hc	
			[KA/m]		
Fe-Cr-Co	等方性	0.80	42	40	12
	異方性	1.00	46	45	28
		1.30	49	47	43
アルニコ系	アルニコ5 JIS-MCB500	1.25	—	50.1	39.8
	アルニコ5 JIS-MCB750	1.35	—	61.7	63.7
	アルニコ6	1.065	—	62.9	31.8
	アルニコ8	0.80	—	111	31.8
フェライト系	BaFe ₁₂ O ₁₉ 等方性	0.22～0.24	255～310	143～159	7.96～10.3
	BaFe ₁₂ O ₁₉ 湿式異方性 (高エネルギー積型)	0.40～0.43	143～175	143～175	28.6～31.8
	BaFe ₁₂ O ₁₉ 湿式異方性 (高保磁力型)	0.33～0.37	239～279	223～255	19.9～23.9
	SrFe ₁₂ O ₁₉ 湿式異方性 (高エネルギー積型)	0.39～0.42	199～239	191～223	26.3～30.2
	SrFe ₁₂ O ₁₉ 湿式異方性 (高保磁力型)	0.35～0.39	223～279	215～255	20.7～26.3
希土類系	Sm ₂ Co ₁₇	1.12	550	520	250
	Nd ₂ Fe ₁₄ B	1.23	960	880	360

使用される。

3. センダスト

Fe - 9.5% Si - 5.5% Alを代表組成とする合金はセンダストと呼ばれ高い透磁率と低い保磁力を有し、耐摩耗性にも優れており磁気ヘッドに使用される。

4. ソフトフェライト

ソフトフェライトはFe₂O₃と二価の金属酸化物MOとの化合物でMO · Fe₂O₃の一般式で表される。比抵抗が著しく高いので渦電流損失が小さく、高周波用途の磁芯材料として多く使用されている。

5. アモルファス合金

アモルファス合金は、磁気異方性が零で磁気的均一性が良い画期的な軟質磁性材料で、Fe基液体急冷アモルファス薄帯、零磁歪Co系液体急冷アモルファス薄帯、Co基スパッタアモルファス薄膜が開発してきた。Fe基液体急冷アモルファス薄帯は、Fe-Si-Bを基本組成とし、飽和磁束密度が大きく鉄損が小さいので電力トランスの磁芯に使用される。

零磁歪Co系液体急冷アモルファス薄帯は、Co-Fe-Ni-Si-Bの合金で低い保磁力と高い透磁率を有するのでkHz帯域の高周波インダクタ、トランス、磁気ヘッドに適している。

Co基スパッタアモルファス薄膜は液体急冷に比べ高Co濃度までアモルファスが安定するので高飽和磁束密度を必要としMHzの高周波で動作する薄膜ヘッド材に適している。

6. ナノ結晶合金

ナノ結晶合金は結晶粒径が10～20nmの磁性材料であり、高透磁率、高磁束密度を有する。代表的な合金には液体急冷アモルファスを焼鈍してナノ結晶化したFe-Si-B-Nb-Cu系薄帯とスパッタアモルファスをナノ結晶化したFe-M-B（M : Zr、Hf、Nb）薄膜がある。前者はトランス、後者は磁気ヘッドに使用される。

7. 金属-非金属ナノグラニュラーソフト磁性材料

これは、SiO₂やAl₂O₃等の絶縁体中にCoやFe等の強磁性金属がナノレベルで析出した磁性薄膜で、高飽和磁束密度と高電気抵抗を有し超高周波インダクタ、超高密度磁気記録用ヘッド、超高周波電源トランス・フィルターへの適用が期待される。

◇ 硬質磁性材料

硬質磁性材料には金属合金系としてFe-Cr-Co系、アルニコ系が、フェライト系としてBa、Sr系が、希土類系としてSmCo系、Nd-Fe-B系等が

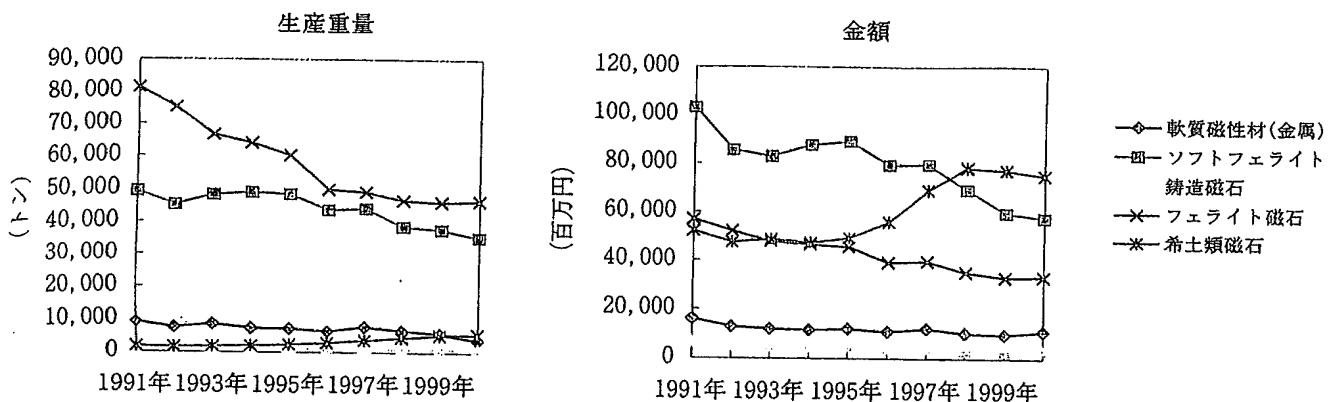


図 1 磁性材料の生産動向

ある。

1. 金属系磁石

Fe-Co-Ni-Alを基本にした磁石はアルニコ磁石と呼ばれ、主として鋳造で作られる。保磁力は熱処理により析出する強磁性相 α 1 (Fe, Co) による。

残留磁束密度の温度特性が安定しているので精密計測器等に使用される。同様な保磁力機構を持つ磁石にFe-Cr-Co磁石がある。この磁石は溶体化状態で韌性があり圧延、伸線等の塑性加工ができる。

2. フェライト磁石

フェライト磁石は $MO \cdot 6Fe_2O_3$ ($M= Ba, Sr$) で表されるマグネタイト・ランバイト型化合物を用いた磁石である。これらの磁石の最大エネルギー積は希土類磁石には及ばないがコストパフォーマンスにすぐれ磁石材料の中では一番多く使用されている。

3. 希土類磁石

最初の希土類磁石であるSm-Co系磁石が開発されて以来、希土類磁石の開発が進み、最大エネルギー積は飛躍的に向上した。

Nd-Fe-B系の焼結磁石では最大エネルギー積は400kJ/m³以上に達する。希土類の主流はNd-Fe-B系でMRIやVCM用等の磁石として使用される。Nd-Fe-B系の超急冷粉を用いたボンド磁石も開発されスピンドルモーター等に使われている。またN浸入型のSm-Fe-N系が新しい磁石として研究されている。

製造方法からの磁気特性向上の取り組みとして、Nd-Fe-B合金を水素の吸収放出反応で処理して結晶粒を微細化する方法(HDDR法)やNd-Fe-B磁石でパルス磁界による粉末の配向とゴム型による静水圧成形を組合せて配向度と磁気特性を高める方法が提案された。

またFe₃B等のソフト磁性とNd₂Fe₁₄B等のハード磁性相を組合せた新しい概念のナノコンポジット磁石(交換スプリング磁石)の研究も行われている。

◇ 磁性材料の生産動向

図1に磁性材料の生産実績の推移を示す。全体に減少傾向であるが、希土類磁石だけが量、金額ともに伸びている。

2. 永久磁石材料

(1) 希土類磁石

日立金属(株) とく徳 ながまさあき
新事業開発センター

まえがき

希土類元素を含む金属間化合物を主成分とする希土類磁石は、1970年代の初めから実用化された高性能永久磁石材料である。材質的には SmCo_5 、 $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ およびNd-Fe-Bの3種に分類され、焼結磁石とボンド磁石が市場に存在する。

焼結磁石は粉末冶金法で作製され、ボンド磁石は有機バインダーで複合化されたコンポジット材料である。希土類磁石は近年のIT不況の影響で生産量は低下しているが、省エネ、環境対策と大きく関わる将来にわたって重要な工業材料である。

本稿では希土類磁石の種類と使用法について述べる。

◇ 希土類磁石の種類¹⁾

表1に代表的な希土類磁石の材質とその特徴の概要を示す。 SmCo_5 系焼結磁石は第1世代の希土類磁石で、エネルギー積 $(\text{BH})_{\max}$ は 160 kJ/m^3 程度であるが、着磁容易で高い信頼性を有する。

$\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 系焼結磁石はキュリ一点が高く、保磁力(HcJ)が組成・熱処理によって可変で、耐熱性

性が良好な材料である。Nd-Fe-B系焼結磁石は $(\text{BH})_{\max}$ が高く、Co含有量が少ないため(Coを含まない材質もある)コストパフォーマンスに優れた高性能材である。

Nd-Fe-B焼結磁石のHcJはNdをDyという重希土類元素で置換することによって残留磁束密度(Br)は低下するが、その増大が可能で、図1に示すようにHcJの異なる多くの材質が種々の用途に利用できる。

着磁も容易で使い易い材質であるが、耐食性が悪く表面処理が不可欠である。

異方性 $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 系ボンド磁石は耐熱性および耐

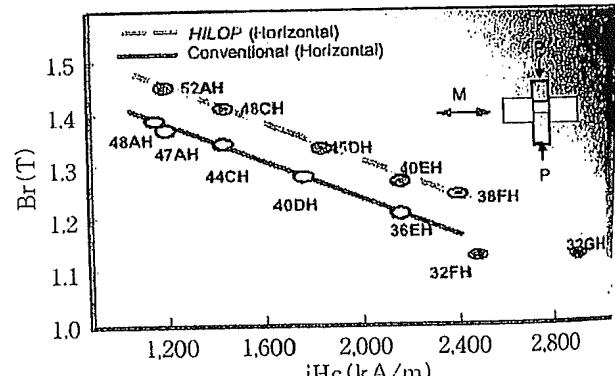


図 1 Nd-Fe-B系希土類磁石の種類²⁾
(BrとHcJの組合せ)

表 1 希土類磁石の材質と特徴

材質	$(\text{BH})_{\max}$ (kJ/m ³)	HcJ(MA/m)	特 徴	成形方法
SmCo_5 焼結	159	1.6	着磁容易	—
$\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 焼結	239	0.6~2.0	耐熱性良好	—
Nd-Fe-B焼結	318~398	1.2~2.8	高性能、着磁容易	—
$\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ ボンド	119	0.5~0.8	高性能、耐熱性良好	異方性圧縮
Nd-Fe-Bボンド	80	0.8	製造容易、着磁自由度大	等方性圧縮
Sm-Fe-Nボンド	103	1.2	高性能	異方性射出

食性の優れたボンド磁石であるが、組成的にCoを多く含むためコストパフォーマンスは良くない。

等方性Nd-Fe-B系ボンド磁石は磁場中配向が不要で成形し易く、着磁の自由度が高い。異方性Sm-Fe-N系ボンド磁石は最近実用化された射出成形ボンド磁石であるが、磁粉粒径が小さく良好な射出成形が可能である。

◇ 永久磁石の使用法

永久磁石の応用は永久磁石の発生する磁束を利用して、クーロンの法則、ファラデーの法則またはローレンツの法則を基本とするものに大別できる¹⁾。

クーロンの法則は磁気エネルギーを機械エネルギーに変換するもので、磁気カップリング、磁気ペアリング等がある。ファラデーの法則は電磁誘導の法則とも言われ、機械エネルギーを電磁エネルギーに変換するもので、ジェネレータが代表例である。ローレンツの法則は磁界と電流の相互作用の法則でスピーカ、モータVCM (Voice Coil Motor) が応用例である。

永久磁石の使用に当たっては実際の応用における①必要磁束量、②許容形状、③使用温度（耐熱性）、④使用環境（耐食性、反磁界）、⑤着磁条件、⑥機械強度、⑦長期信頼性、等を考慮して使用材料の選定を行った後、具体的磁石形状（磁気回路）を決定してゆく。

必要磁束量が大きく、磁石に対する許容空間が限られている場合は高エネルギー積を有する磁石を選ぶ必要があるが、使用温度範囲によってその値のHcJレベルおよびHcJの温度係数を吟味しなければならない。使用条件における反磁界の大きさもHcJ選択の際重要である。

Nd-Fe-B系焼結磁石の場合は使用環境によって表面処理の水準を決定する必要がある。表面処理としてはNiめっき、エポキシコート、Alクロメト処理が代表的であるが、コストパフォーマンスを考慮して使用環境に耐えうる表面処理が選択される。

着磁は一般に磁気回路を組立た後行われるが、Co₅₇系焼結およびボンド磁石はその保磁力機能がピンニング型であるため、HcJの水準によつ

ては着磁後の組立が必要になる場合がある。着磁性は材質や材質の持つHcJによって変化するので配慮することが必要である⁴⁾。

機械強度は材質の基本になる金属間化合物に依存する。希土類焼結磁石の中ではNd-Fe-B系の機械強度が最も優れているが、焼結体の内部欠陥や結晶粒径にも依存する。

機械強度は特にモータ用途の回転数の高い表面磁石型ロータにおいて注意を要する。ボンド磁石は成形によって寸法精度が確保でき、比較的機械強度が高いため、薄肉形状で使用されることが多い。代表的な用途はスピンドルモータである。

材質が選定されれば、シミュレーションを用いて必要形状を追いかけていくことになる。経済性と信頼性のマージンを考慮して磁石形状が決定される。

最近のシミュレーション技術では実験との整合はかなり良くなっているが、静的な解析には問題は少ない。今後は動解析の進歩が待たれる。

◇ 円筒形磁石

ここでは円筒形状焼結磁石の回転機ロータ応用について述べる。リング磁石の異方性の付与には径2極を除けば、ラジアル（放射状）異方性および極異方性の2種類がある。

図2に8極における両者の表面磁束密度のプロファイルを示す。ラジアル異方性の場合はスキュ

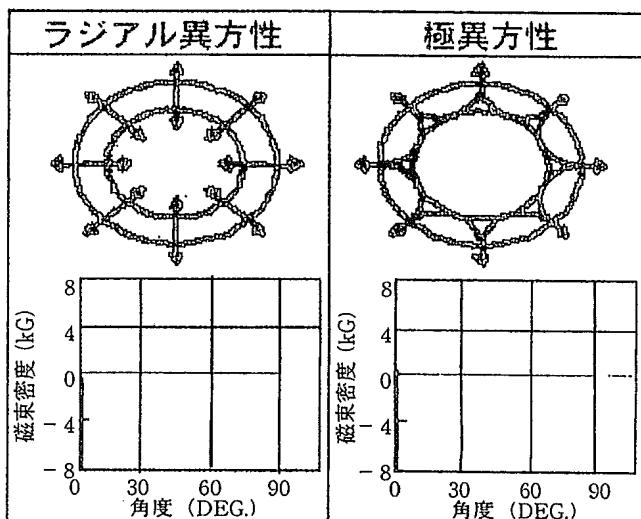


図 2 円筒状希土類磁石の異方性方法
と表面磁束密度の相関

一等任意の着磁が可能である。

また、極異方性の場合は正弦的な表面磁束密度が得られる。円筒形状磁石の場合、外形寸法精度が良く、回転子として均一な磁束密度が得られる。

円筒形磁石を用いると回転子として均一な表面磁束密度が得られるため、コギングトルクの低減にも有利である。コギングトルク低減にはステータ側で対処すべき部分もあり、総合的な対策が必要である。

この様に、円筒形状磁石の場合、磁束密度のプロファイルが異方性のつけ方と着磁の方法によって変化する。円筒形状の異方性磁石はロータシャフトへの取付けも容易で、信頼性の高いロータが得られる使い易い磁石である。

む す び

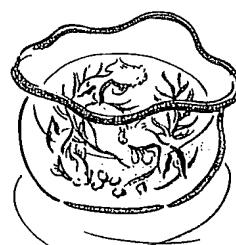
希土類永久磁石も第1世代の SmCo₅が開発され

て30年以上が経過し、この間、工業材料として様々な応用分野で高性能希土類磁石を使いこなしてきた。

軽薄短小を目的とした応用でスタートした希土類磁石も最近では大型回転機への応用が増加している。サーボモータ、EV、HEV用モータ、ジェネレータ等が具体的な例であるが、省エネ、環境対策に無くてはならない工業材料としてさらなる発展が期待される。

参 考 文 献

- 1) 電気学会技術報告第729号「高性能永久磁石の特性、安定性と応用」(1999年5月)
- 2) 内田、高橋、三家本：までりあ、38 (1999) 148
- 3) R.J. Parker : "Advances in Permanent Magnetism" (John Wiley & Sons, 1990)
- 4) 電気学会技術報告第859号「先端磁石材料の着磁特性並びに応用」(2001年10月)



(2) 鋳造・圧延磁石

三菱製鋼(株) ふくだまさかつ
宇都宮製作所 技術部 福田方勝

まえがき

一般に、鋳造磁石はアルニコ磁石とFeCrCo磁石を指します。また、圧延磁石は塑性加工法によって製造される永久磁石で、種々の材料が開発されてきましたが、現在では、FeCrCo磁石、バイカロイ、FeMn磁石、MnAlC磁石などがあります。

永久磁石の規格としては、国際規格と整合するよう1998年にJISが改正されています。鋳造磁石ではアルニコ磁石、FeCrCo磁石、バイカロイの3つの磁石が規格化されました。ただし、各製造会社の記号で呼ばれる場合が多いようです。今後、国際化により徐々に国際規格が使用されていくものと思われます。

◇ アルニコ磁石

アルニコ磁石は構成元素であるAl、Ni、Coの頭文字をとつつけられた代表的な鋳造磁石の名称です。1933年に三島徳七先生らが発明したMK鋼と1934年に本多光太郎先生らが発明したNKS鋼を基に、長年にわたる研究開発成果により完成

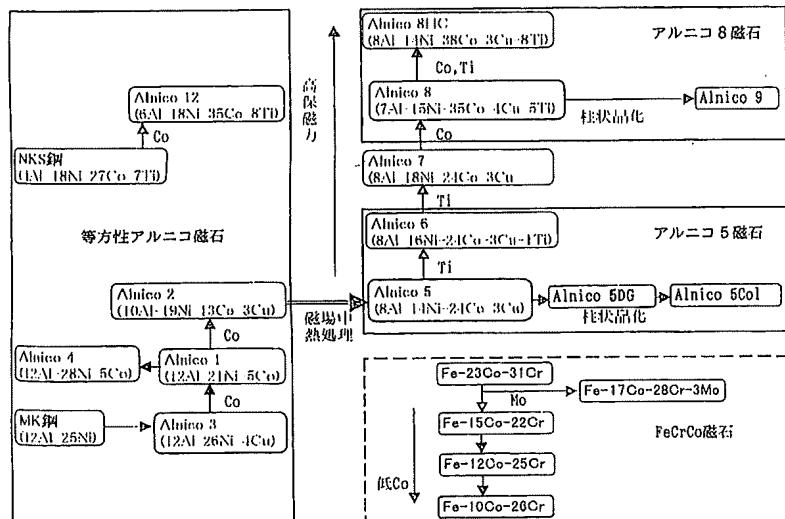


図 1 アルニコ磁石、FeCrCo磁石の系統図

された合金系永久磁石です。多くの材質が開発され実用化されています。アルニコ磁石とFeCrCo磁石の系統図を図1に示します。

1. 等方性アルニコ磁石

等方性アルニコ磁石にはCoを0~13%含有したAlnico1~Alnico4があります。磁気特性は必ずしも高くはありません。Alnico3はCoを含まず、MK鋼と類似している組成です。

Coを含まないため、アルニコ磁石というよりは、アルニ磁石と呼ぶこともあります。等方性アルニコ磁石は溶体化処理温度から空冷し時効処理だけで磁気特性が得られることから、価格が安いという特徴があります。また、すべての方向で磁気特性が同じであるという等方性磁石の特徴を生かし、ヒステリシス材としての用途にも適しています。

2. アルニコ5磁石

Fe-8Al-14Ni-24Co-3Cuを代表組成とするのがアルニコ5磁石です。Alnico2を磁場中で冷却することにより磁気特性が格段に向上することが見出されてから研究開発されたものです。溶体化処理

温度から磁場中で徐冷し時効処理を行います。磁気特性は、保磁力は中位ですが残留磁束密度が高いという特徴があります。鋳造磁石の中で最もコストパフォーマンスに優れており広く使用されています。鋳造の際、冷し金を用いて鋳造組織を柱状晶化することにより(Alnico5DG、Alnico5Col)最大エネルギー積が向上します(79kJ/m³)。

3. アルニコ8磁石

Fe-7Al-15Ni-35Co-4Cu-5Tiを代表組成とするのがアルニコ8磁石です。保磁力を高くするために、アルニコ5に比べてCoを増加しTiを添加しています。溶体化処理後800°C付近の磁場中で熱処理

表 1 鋳造・圧延磁石と他の磁石の比較

分類	種類	$(BH)_{max}$ (kJ/m³)	B_r (T)	H_c (kA/m)	$\alpha (B_r)$ (%/K)	$\alpha (H_c)$ (%/K)	使用上限 温度 (°C)	特徴
鋳造磁石	アルニ	12	0.65	40	-0.02	+0.03	550	Co含まない等方性
	アルニコ5	44	1.30	52	-0.02	+0.03	550	Br高い
	アルニコ8	44	0.90	120	-0.02	+0.03	550	鋳造磁石では H_c 大
	FeCrCo	44	1.30	48	-0.03	+0.04	500	Br高い
圧延磁石	FeCrCo	44	1.30	48	-0.03	+0.04	500	形状自由度大
フェライト 磁石	Sr フェライト	36	0.45	280	-0.18	+0.40	250	価格安い、低温減磁する
希土類磁石	SmCo	240	1.12	840	-0.03	-0.25	350	$(BH)_{max}$ 高
	NdFeB	400	1.45	880	-0.11	-0.59	150	$(BH)_{max}$ 高 高温減磁する

し、その後時効処理をします。磁気特性は残留磁束密度はあまり大きくはありませんが、保磁力が大きいという特徴があります。

アルニコ5磁石と同様に、鋳造組織を柱状晶化することにより最大エネルギー積が向上します(96kJ/m³)。また、CoとTiをさらに増加させ(38Co-8Ti)、保磁力を150kA/m以上としたものもあります(Alnico8HC)。

Co含有量が高くTiを含むため非常に脆く、研磨加工の際注意が必要です。

◇ 鉄・クロム・コバルト磁石

FeCrCo磁石は1971年金子秀夫先生らにより発明されたFe-23Co-31Cr合金を基に研究開発された合金磁石です。開発当初はCo含有量がアルニコ5磁石と同程度の20~25Coの組成について研究が行われました。その後、熱処理を容易にする目的から15Coの組成について研究が行われ、Co価格の高騰を契機としてより低Co含有量の組成の研究が行われました。

現在では、Fe-(8~15)Co-(21~28)Crを基本組成とし、アルニコ5磁石と同等の磁気特性が得られるものと、保磁力を大きくするためにCoを増加しMoを添加した合金があります。溶体化処理を容易にするためにV、Alを添加したり、不純物のCやNを固定するためにTiを添加しています。

FeCrCo磁石はアルニコ5磁石と比べCo含有量が1/2~2/3であるため、価格メリットが大きいという特徴があります。

◇ 鋳造磁石・圧延磁石の特徴

鋳造磁石は、大気溶解、シェルモールド鋳造、

粗加工、熱処理、仕上加工という工程で製造されます。加工は砥石による研磨加工です。

一方、圧延磁石は、真空溶解、鍛造、圧延という工程で形状を付与します。

その後、熱処理、必要に応じて仕上加工という工程で製造されます。圧延、打抜き、絞り加工、バイトによる切削加工も可能であることから、複雑、薄肉、細線、小型形状の製品が比較的容易に製造できる特徴があります。

鋳造・圧延磁石と他の代表的な磁石と比較して表1に示します。最も優れている特徴は、 B_r と H_c の温度特性が極めて良いということです。

最強の磁石であるNdFeB磁石でも B_r の温度係数は-0.11%/Kでアルニコ磁石の5倍も悪く、また、 H_c の温度係数が-0.59%/Kと大きいのは熱安定性に対し致命的です(100°Cの温度上昇で保磁力が40%に減少します)。

安価な磁石の代表であるフェライト磁石も H_c の温度係数が+0.40%/Kと正の大きな値を持ちます。これは温度が下がると保磁力が減少することを示します(低温減磁)。

むすび

鋳造磁石の日本での生産量は、全磁石の3%以下まで減少しています。磁気特性は希土類磁石には及ばず、また、価格もフェライト磁石に及ばず苦戦している状況です。

しかし、「永久」磁石の意味するように、磁気特性が非常に安定しているのがアルニコ磁石、FeCrCo磁石の特徴です。これらの磁石の良さをもう一度見直してみる必要があると思います。

(3) ボンド磁石

愛知製鋼(株) みたらい
電子磁性部 磁石事業室 御手洗 ひろなり 成

まえがき

ボンド磁石は、種々の磁石粉末をプラスチック等で結合した磁石の総称で、焼結磁石に比べて磁力性能は劣るが形状の自由度が高いため独自の市場を形成している。

なかでも主な市場である情報機器分野においては、複写機、プリンター用のマグロール、パソコン用のスピンドルモータ等に使用されている。また、近年、ボンド磁石の磁気特性は $(BH)_{max} 25 \text{ MGOe}$ まで達し、益々適用分野を拡大しつつある。

◇ ボンド磁石の特徴

ボンド磁石の特徴は、①薄肉リング、シート、バー等、複雑形状が可能、②二次加工なしで $5/100\text{mm}$ 以下の高寸法精度が可能、③われ・欠けがないので焼結で必要となる飛散防止カバー等

が不要、④着磁のみで多極化できるのでプラシレスモータに有効、⑤部品との一体成形、圧入が可能なため組付コスト、高い同軸度を実現、⑥配合する磁粉量の調整で磁力のタイトなコントロールが容易で、優れたコストパフォーマンスの追及が可能、など部品指向する場合のメリットが大きい。

◇ ボンド磁石の種類

ボンド磁石は、磁石粉末の種類、結合材の種類、成形方法および異方化処理の有無によって分類される。この組合せによる分類を表1に示す。

磁石粉末は、フェライト系と希土類系の2種類に大別され、前者は歴史的に古く広く普及しているが、 $(BH)_{max}$ が高々 2 MGOe と低い。後者は、 $(BH)_{max}$ が $6 \sim 25 \text{ MGOe}$ の範囲を網羅している。 $(BH)_{max}$ は、一般的に圧延ロール < 射出成形 < 押出成形 < 圧縮成形の工法順で高くなる。

これは、この順序で磁粉配合比率が高くなるた

表 1 代表的なボンド磁石の特性と典型的な磁石外観²⁾

磁粉 成形法	フェライト系				希土類系			
	ロール圧延	押出	射出	圧縮	射出			
ボンド材 (バインダー)	ゴム (PVC、CPE、NBR)	熱可塑性樹脂 (12ナイロン、PPS)	熱可塑性樹脂 (エポキシ)	熱硬化性樹脂 (エポキシ)	熱可塑性樹脂			
配向	異方性	等方性	異方性	等方性	異方性	異方性	等方性	等方性
$B_r (\text{kG})$	2.3	1.5	2.8	1.5	2.9	10.5	7.7	8.2
$bH_c (\text{kOe})$	2.1	1.3	2.4	1.2	2.2	8.5	6.4	6.5
$iH_c (\text{kOe})$	2.7	2.7	3.2	2.4	2.5	14.0	9.0	12.5
$(BH)_{max}$ (MGOe)	1.3	0.5	1.8	0.5	2.0	25.0	12.5	14.5
密度 (g/cm^3)	3.7	3.7	3.7	3.5	3.7	6.4	6.4	5.1
用途 外観	小型モータ用磁石 	複写機マグロール 	—	小型モータ用磁石 	パソコン用モータ 			

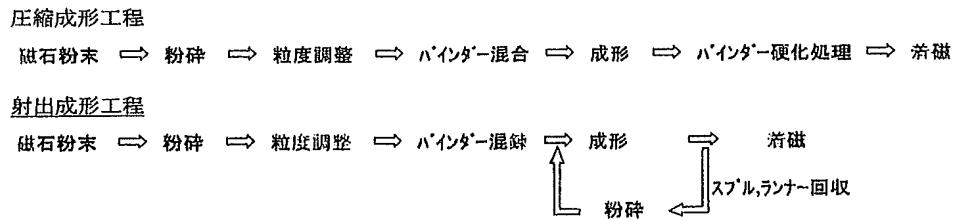


図 1 ボンド磁石の市場と主な製造工程

めである。また、結合剤は成形法と密接に関係している。耐熱温度は、結合剤の種類および磁石粉の温度特性により決まるが、現時点では、上限は150～180℃程度である。異方化の有無は、成形時に磁粉の方位を揃えながら形状を整える処理を施すか否かを意味し、異方化することにより磁力は、倍増する。

異方化処理は機械配向、磁場配向が一般的である。特にボンド磁石は、実機の磁気回路を有効に磁束が流れるように任意の方向に異方化することが容易である。

◇ ボンド磁石の製造工程

圧縮成形と射出成形について製造工程の概略を図1に示す。成形は大きく3工程に別れ、原料調整、成形、着磁工程からなる。原料工程は、高い流動性と磁石粉の高配合化が、成形工程は高い異方化度と高密度化の両立が、また表面処理においては膜の高信頼性化がコア技術となっている。

また、射出成形においては、結合剤に熱可塑性樹脂を使用しているためスプルやランナーの再利用が可能である。

◇ ボンド磁石の市場と主な用途

表2に2000年の世界のボンド磁石生産金額および生産量³⁾を示す。世界の市場規模は1,100億円でフェライト系が70%、希土類系が30%を占める。生産量ではフェライト系が97%で希土類系はわずか3%に過ぎない。生産金額において、日本は世界の約30%とトップである。

近年、成長著しい希土類系においては、生産金額こそ日本がトップだが、生産量においては中国、アジアで50%を占めている。フェライト系のゴ

表 2 世界のボンド磁石の生産金額と生産量
生産金額(生産量) 単位: 億円/年 (ton/年)

磁石種類 国名	フェライト系		希土類系 樹脂タイプ	合計
	ゴムタイプ	樹脂タイプ		
日本	56 (9,400)	147 (9,500)	116 (700)	319 (19,600)
米国	119 (23,400)	95 (5,100)	42 (400)	256 (28,900)
欧州	102 (35,000)	39 (2,100)	67 (350)	208 (37,450)
アジア	36 (9,900)	47 (5,100)	62 (1,230)	145 (16,230)
中国	42 (11,200)	11 (1,500)	69 (620)	122 (13,320)
その他	36 (10,800)	12 (900)	25 (200)	73 (11,900)
合計	391 (99,700)	351 (24,200)	381 (3,500)	1,123 (127,400)

(1\$: 110円)

ムタイプは家電用小型モータや吸着・雑貨・健康部門、熱可塑性樹脂タイプの大半はOA分野のプリンターや複写機のマグロール、希土類系はパソコン、光ディスクの小型モータに使用されている。

むすび

磁石は、一見磁力が高ければ高いほど小型化が可能で有用に思えるが、実際にDCブラシレスモータへの適用を考えた場合に、要求される磁石の特性としては、多極化でき、高磁力で、薄肉の高い同軸度をもつリング形状である。

これらの要求を満たし最もコストパフォーマンスが高くなるのは、最高磁力の希土類系焼結磁石ではなく、希土類系のボンド磁石である。今後もボンド磁石の特徴を生かしたユニークな磁気回路設計が考案され、益々その用途が広がることが期待される。

参考文献

- 1) Y. Honkura : Intertech Polymer Bonded Magnets 2002 Conference
- 2) ボンド磁石各社カタログ
- 3) 原田英樹 : 日本応用磁気学会第120回研究会資料、120-1, P.5 (2001)